

Rec'd PTO 25 MAY 2005

# Reactor and process for carrying out heterogeneous catalytic reactions

**Patent number:** EP0534195

**Publication date:** 1993-03-31

**Inventor:** RUPPEL WILHELM DR (DE); THOMAS HANS-RICHARD DR (DE); BOECK STEFAN DR (DE); HERZOG KLAUS DR (DE); RESCH PETER DR (DE); PLUECKHAN JUERGEN DR (DE); MROSS WOLF DIETER DR (DE)

**Applicant:** BASF AG (DE)

**Classification:**

- **international:** B01J8/02

- **european:** B01J8/02B2; B01J8/02H

**Application number:** EP19920115129 19920904

**Priority number(s):** DE19914131446 19910921

**Also published as:**

JP5261272 (A)

DE4131446 (A1)

EP0534195 (B1)

**Cited documents:**

GB2046618

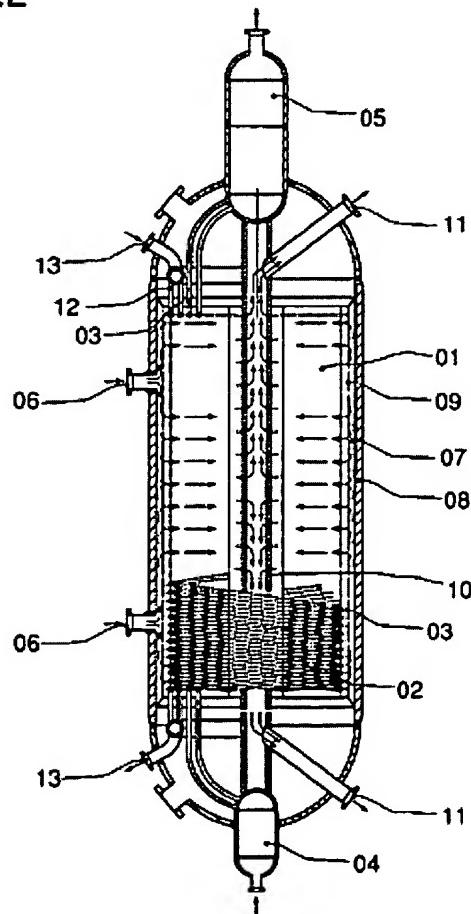
US2363738

[Report a data error here](#)

## Abstract of EP0534195

The application relates to a reactor and a process for carrying out heterogeneous catalytic gas-phase reactions. The process is characterised in that the reaction mixture flows through a loose catalyst bed (01) radially with respect to the longitudinal axis of the reactor and preferably in a centripetal direction. A further characteristic of the process according to the invention is the incorporation, in the catalyst bed (01), of a heat exchanger (02) having coiled tubes (03) which have a heat transfer medium flowing through them to remove the reaction heat liberated.

**FIG.2**



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

[REDACTED] supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide [REDACTED]

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



(19) Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11) Veröffentlichungsnummer: 0 534 195 A1

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 92115129.6

(51) Int. Cl.<sup>5</sup>: B01J 8/02

(22) Anmeldetag: 04.09.92

(30) Priorität: 21.09.91 DE 4131446

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
31.03.93 Patentblatt 93/13

(64) Benannte Vertragsstaaten:  
BE DE ES FR GB IT NL

(71) Anmelder: BASF Aktiengesellschaft  
Carl-Bosch-Strasse 38  
W-6700 Ludwigshafen(DE)

(72) Erfinder: Ruppel, Wilhelm, Dr.  
Schwanthaler Allee 19  
W-6700 Ludwigshafen(DE)  
Erfinder: Thomas, Hans-Richard, Dr.  
Richard-Wagner-Strasse 36

W-6800 Mannheim 1(DE)

Erfinder: Boeck, Stefan, Dr.

Pfalzgrafenstrasse 12

W-6700 Ludwigshafen(DE)

Erfinder: Herzog, Klaus, Dr.

Gronauer Strasse 49

W-6700 Ludwigshafen(DE)

Erfinder: Resch, Peter, Dr.

U 5,14

W-6800 Mannheim 1(DE)

Erfinder: Plueckhan, Juergen, Dr.

Bensheimer Ring 19b

W-6710 Frankenthal(DE)

Erfinder: Mross, Wolf Dieter, Dr.

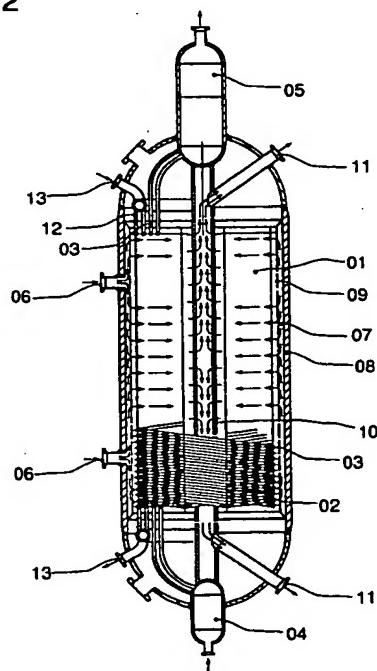
Anselm-Feuerbach-Strasse 21

W-6710 Frankenthal(DE)

### (54) Reaktor und Verfahren zur Durchführung heterogenkatalytischer Gasphasenreaktionen.

(57) Die Anmeldung betrifft einen Reaktor und ein Verfahren zur Durchführung heterogenkatalytischer Gasphasenreaktionen. Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsgemisch eine lose Katalysatorschüttung (01) radial zur Längsachse des Reaktors und vorzugsweise in zentripetaler Richtung durchströmt. Weiteres Kennzeichen des erfindungsgemäßen Verfahrens ist, daß in die Katalysatorschüttung (01) ein Wärmetauscher (02) mit gewickelten Rohren (03) eingebaut ist, in denen ein Wärmeträgermittel zur Abfuhr der freiwerdenden Reaktionswärme strömt.

FIG.2



EP 0 534 195 A1

Die vorliegende Erfindung betrifft einen Reaktor und ein Verfahren zur Durchführung heterogenkatalytischer Gasphasenreaktionen.

Beispiele für solche heterogenkatalytischen Gasphasenreaktionen sind etwa die Herstellung von Ethylenoxid aus Ethylen und Sauerstoff, die Herstellung von Acrylsäure aus Acrolein und Sauerstoff, die Herstellung von Methylacrylsäure aus Methacrolein und Sauerstoff, die Herstellung von Styrol durch Dehydratisierung von Methylphenylcarbinol, die Herstellung von Methanol aus Synthesegas, die Methanisierung von Synthesegas, die Tieftemperaturkonvertierung, die Umsetzung von Wasser mit Olefinen zu Alkoholen, die Oxychlorierung von Olefinen oder Aromaten, oder die Herstellung von Methylaminen aus Methanol und Ammoniak. Die zitierten Beispiele stellen jedoch in keinster Weise eine vollständige Aufzählung aller mit dem erfindungsgemäßen Reaktor und Verfahren durchführbaren Umsetzungen dar.

Reaktortypen zur Durchführung heterogenkatalytischer Gasphasenreaktionen sind in großer Zahl bekannt. In der überwiegenden Mehrzahl aller technisch angewendeten heterogenkatalytischen Gasphasenreaktionen wird ein Geradrohrbündelreaktor verwendet. Solche Reaktoren sind seit langem Stand der Technik und werden von zahlreichen Firmen hergestellt und gewerblich vertrieben. Die anfallende Abwärme wird in Geradrohrbündelreaktoren durch ein geeignetes Kühlmedium, wie zum Beispiel Druckwasser oder hochsiedende Kohlenwasserstoffe, abgeführt und meist zur Dampfproduktion verwendet.

Diesem Verfahren, insbesondere dem dabei verwendeten Geradrohrbündelreaktor, sind einige Nachteile immanent. So muß die vom Gasgemisch durchlaufene Länge der Katalysatorschüttung und damit des Reaktors für einen befriedigenden Umsatz relativ groß, im Regelfall einige Meter sein. Dies führt zu hohen Kosten für die Gaskompression, da der Druckverlust über die Reaktorlänge üblicherweise erheblich ist. Ein weiterer Nachteil dieses Reaktortyps ist, daß die Kapazität solcher Rohrbündelreaktoren begrenzt ist. Die Reaktoren bestehen aus bis zu mehreren tausend einzelner Rohre, die in einem Reaktorkörper zusammengefaßt sind. Eine Erhöhung der Produktionsleistung eines solchen Reaktors ist nicht durch Vergrößerung des Durchmessers der einzelnen Rohre möglich, da in diesem Fall der mittlere Abstand der einzelnen Katalysatorpartikel von der gekühlten oder geheizten Rohrwandung größer wird. Dadurch wird die Kühlung schlechter, so daß einzelne, überhitzte, Katalysatorpartikel als Zündquelle für ein "Durchgehen" der Reaktion fungieren können. Durch die hohe, in einem solchen Fall freiwerdende Reaktionswärme wird der Katalysator in der Regel irreversibel geschädigt. Eine Erhöhung der Produk-

tionsleistung eines Rohrbündelreaktors ist also nur durch Erhöhung der Rohrzahl bei geeignetem Durchmesser der Einzelrohre möglich. Auch dieses Vorgehen führt jedoch zu Problemen. Da sich, mit Ausnahme von salzbadgekühlten Reaktoren für Reaktionen bei Temperaturen über 300°C, die erforderliche Druckfestigkeit des Reaktorkörpers am hohen Druck des Kühlmittels und nicht am geringeren Druck des Reaktionsgasgemisches orientieren muß, sind diese Reaktoren sehr dickwandig, schwer, aufwendig gefertigt und damit auch teuer und nur noch unter sehr großen Schwierigkeiten transportierbar. Die heutzutage realisierten Baugrößen erreichen bereits die Grenze des wirtschaftlich sinnvollen. Ein weiterer großer Nachteil dieser Bauart ist, daß das Geradrohrbündel sehr anfällig gegen Wärmespannungen ist, die durch Temperaturdifferenzen zwischen Reaktordruckbehälterwand und Reaktionsrohrwand hervorgerufen werden. Hierdurch besteht die Gefahr, daß bei unsachmäßiger Bedienung oder gravierenden Betriebsstörungen Reaktionsrohre knicken oder ausreißen oder daß die Reaktordruckbehälterwand aufreißt.

Ein prinzipiell anderer Reaktortyp zur Durchführung heterogenkatalytischer Gasphasenreaktionen beruht auf der Anwendung einer losen Katalysatorschüttung mit eingebettetem Wärmetauscher oder, im Falle exothermer Reaktionen, einer anderen geeigneten Art der Wärmeabfuhr. Auch hier ist der Stand der Technik groß und in zahlreichen Schriften niedergelegt. So beansprucht etwa US-A-2 744 813 einen Reaktor mit loser Katalysatorschüttung, geraden Kühlrohren und axialem Gasstrom, EP-B 1 82 609 (ICI) einen ähnlichen Reaktor mit radialem Gasstrom. Reaktoren mit geraden Kühlrohren in einer losen Katalysatorschüttung benötigen jedoch ebene Rohrböden und leiden damit an denselben Problemen wie ein konventioneller Geradrohrbündelreaktor. Darüber hinaus gestaltet sich das Einfüllen und Entleeren des Katalysators wesentlich schwieriger. Eine andere Bauart von Reaktoren mit loser Katalysatorschüttung und eingebettetem Wärmetauscher verwendet einen Wärmetauscher aus Lagen gewickelter Rohre (DE 34 14 717 (Linde), DE 28 48 014 (Linde), DE 39 35 030 (Linde)). Mit gewickelten Rohren entfällt die Notwendigkeit von ebenen Rohrböden und Probleme mit Thermospannungen sind infolge der Elastizität der Rohrwickel praktisch nicht gegeben. Die Rohre werden in dieser Bauart quer angestromt, durch die besondere Geometrie der Rohranordnung ist die Gasvermischung und damit der konvektive Wärmetransport stark erhöht. Darüber hinaus ist der mittlere Abstand eines Katalysatorkorns von der nächsten Wärmeaustauschfläche geringer als in vergleichbaren Geradrohrbündelreaktoren. Beide Effekte führen zu einer deutlichen Senkung der benötigten Wärmeaustauschfläche gegenüber Ge-

radrohrbündelreaktoren desselben Katalysatorvolumens auf etwa die Hälfte. Die spezifische Wärmeaustauschfläche kann des weiteren an den Reaktionsfortschritt angepaßt werden oder die Temperatur des in den Rohren strömenden Kühlmittels kann variiert werden (EP 339 748 A2 (Shell)). Eine weitere Wärmeübertragungsmöglichkeit besteht im Zusammen von Reaktanden oder Inertgasen längs der Katalysatorschüttung (DE 28 48 014, DE 39 35 030) oder, bei exothermen Reaktionen, im Durchleiten eines kalten Reaktoreingangsgases durch die Katalysatorschüttung (US-A 1 835 827 (Du Pont)).

Eine bei praktisch jeder heterogenkatalytischen Gasphasenreaktion zu beobachtende Erscheinung ist, daß das Wertprodukt der Reaktion durch Kontakt mit dem zu seiner Synthese verwendeten Katalysator oder unter den im Katalysatorbett herrschenden Reaktionsbedingungen wieder, zumindest teilweise zerstellt wird, so daß ein Teil des im vorderen Teil der Katalysatorschüttung gebildeten Produkts im hinteren Teil wieder vernichtet wird. Wie jetzt gefunden wurde, ist im Gegensatz zur vorherrschenden Meinung dieser Verweilzeiteffekt für die Ausbeute bedeutender als etwa eine mäßige Temperaturerhöhung. Bei exothermer Zersetzung des Wertprodukts, etwa der Weiteroxidation des Produkts einer Selektivoxidation mit Sauerstoff zu Kohlendioxid, kann durch ein Durchgehen der Reaktion unter exzessiver Wärmeentwicklung der Katalysator irreversibel geschädigt werden. Bei anderen Reaktionen kann der Katalysator durch Zersetzung des Wertprodukts unter Koksabscheidung passiviert werden. Ein anderer, störender Einfluß von im Reaktionsgasgemisch vorhandenem Wertprodukt kann die Inhibition der gewünschten Reaktion durch das Wertprodukt sein. In jedem der aufgezeigten Fällen ist es von Vorteil, das Wertprodukt so rasch wie möglich aus dem Katalysatorbett zu entfernen.

Eine offensichtliche Verfahrensweise, das oben aufgezeigte Problem der Zersetzung des Wertprodukts beim Durchgang durch die Katalysatorschüttung zu mildern, ist, die vom Reaktionsgasgemisch durchlaufene Katalysatorstrecke so kurz wie möglich zu halten. Der Umsatz an Einsatzstoffen zum Wertprodukt sinkt dadurch jedoch, was zumeist durch Temperaturerhöhung kompensiert werden kann, wenn diese Temperaturerhöhung keine negativen Auswirkungen auf das Reaktionsgeschehen hat. Darüber hinaus können durch eine Verkürzung der Katalysatorschüttung der Druckverlust über den Reaktor und damit die Kompressionskosten verringert werden, oder, alternativ, die Produktionsleistung des Reaktors kann durch Vergrößerung der pro Zeiteinheit durch den Katalysator geleiteten Reaktionsgasmengen erhöht werden. Bei Prozessen, die nach dem Prinzip der Kreisgasfahrtweise mit einer kontinuierlichen Ausschleusung von Produk-

ten arbeiten, kann der Druckverlust durch eine Verkürzung der Katalysatorschicht sogar soweit minimiert werden, daß eine solche Erhöhung der durch die Katalysatorschüttung geleiteten Reaktionsgasmenge möglich ist, daß bei konstanter Produktion an Wertprodukt der Umsatzgrad pro Reaktordurchgang verringert werden kann. Dies bringt üblicherweise den zusätzlichen Vorteil einer verbesserten Selektivität, so daß für eine konstant gehaltene Produktion weniger Edukt eingesetzt werden muß als bei herkömmlicher Betriebsweise. Allerdings muß bei erhöhtem Gasdurchsatz und verringertem Umsatzgrad gesichert sein, daß das Aufarbeitungs- und Reinigungssystem die anfallenden Gasmengen bewältigen kann. Die Optimierung von Reaktoren und Prozessen in dem hier skizzierten Parameterfeld ist die übliche Aufgabe eines Fachmanns auf diesem Gebiet.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein verbessertes Verfahren zur Durchführung heterogenkatalytischer Gasphasenreaktionen sowie einen Reaktor zur Durchführung der Reaktionen aufzufinden.

Verbesserte Verfahren zur Durchführung solcher Reaktionen, wie etwa der Herstellung von Ethylenoxid aus Ethylen und Sauerstoff, der Herstellung von Acrylsäure aus Acrolein und Sauerstoff, der Herstellung von Methacrylsäure aus Methacrolein und Sauerstoff, der Herstellung von Styrol durch Dehydratisierung von Methylphenylcarbinol, der Herstellung von Methanol aus Synthesegas, der Methanisierung von Synthesegas, der Tieftemperaturkonvertierung, der Umsetzung von Wasser mit Olefinen zu Alkoholen, der Oxychlorierung von Olefinen oder Aromaten oder der Herstellung von Methylaminen aus Methanol und Ammoniak besitzen große wirtschaftliche Bedeutung.

Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruchs 1 gelöst.

Weitere Merkmale des erfindungsgemäßen Verfahrens sind Gegenstand der Unteransprüche 2 - 10.

In den Ansprüchen 11 - 20 sind Verfahren zur Herstellung von Wertprodukten mittels des aufgezeigten erfindungsgemäßen Reaktors und Verfahrens aufgezeigt.

Besonders vorteilhaft läßt sich eine Verkürzung der vom Reaktionsgasgemisch zu durchlaufenden Katalysatorschüttung dadurch erreichen, daß das Reaktionsgasgemisch nicht durch verkürzte katalysatorgefüllte Rohre eines Reaktors herkömmlichen Typs strömt, sondern daß eine lose Katalysatorschüttung angewendet wird, die von der Reaktionsgasmischung nicht in axialer, sondern in radialer Richtung durchströmt wird. Die Strömungsrichtung kann dabei zentrifugal oder zentripetal sein, wobei die zentripetale Richtung ganz besonders vorteilhaft ist, da die Strömungsgeschwindigkeit des Ga-

ses in diesem Fall vom Eintritt in den Reaktor zum Austritt aus dem Reaktor kontinuierlich zunimmt. Die Verweilzeit des Reaktionsgasgemisches in einer bestimmten Schichtdicke der Katalysatorschüttung sinkt folglich mit dem Reaktionsfortschritt. Dadurch wird bereits gebildetes Wertprodukt beschleunigt aus dem Katalysatorbett entfernt und eventuellen ausbeutevermindernden Nachreaktionen entzogen. Der Fall einer zentrifugalen Strömung des Reaktionsgasgemisches kann unter besonderen Umständen allerdings Vorteile über den einer zentripetalen Strömung aufweisen, insbesondere bei stark volumenvergrößernden Reaktionen. Bei solchen Reaktionen kann durch eine geeignete Dimensionierung des Reaktors oder durch andere Maßnahmen, etwa dem Einbau von Verdrängerkörpern am äußeren Rand des Reaktors, auch bei zentrifugalem Strom eine Verweilzeitoptimierung durchgeführt werden.

Der ganz besondere Vorteil des erfindungsgemäßen Reaktors und Verfahrens in seiner im Normalfall bevorzugten Ausführungsform ist jedoch die beschleunigte Abführung des Wertprodukts aus dem Katalysatorbett bei zentripetalem Gasstrom. Den negativen Effekten zu großer Verweildauer des Wertprodukts im Katalysatorbett, zum Beispiel Ausbeuteverlust durch seine Zersetzung unter möglicher Beschädigung des Katalysators, etwa durch Übertemperaturen bei Totaloxidation des Wertprodukts einer Selektivoxidation mit Sauerstoff oder Verkokung des Katalysators, wird mit dem erfindungsgemäßen Reaktor und Verfahren genauso effektiv begegnet wie der Passivierung des Katalysators durch gebildetes Wertprodukt. Wie bereits oben erwähnt wurde, ist der Effekt einer zu langen Verweilzeit auf die Ausbeute an Wertprodukten bedeutender als der Effekt erhöhter Reaktionstemperatur. Dadurch ist es möglich, bei unbefriedigendem Umsatzgrad die Reaktionstemperatur durch wärmetechnische Maßnahmen mit dem Reaktionsfortschritt anzuheben und so den Umsatz zu vervollständigen.

Ein Ausführungsbeispiel der Erfindung mit den wesentlichen erfinderischen Merkmalen ist in der Zeichnung dargestellt und wird im folgenden näher beschrieben.

Figur 1 zeigt einen Querschnitt durch den erfindungsgemäßen Reaktor,

Figur 2 zeigt einen Querschnitt durch den erfindungsgemäßen Reaktor mit zusätzlich regelbarem Heizkreisumlauf.

Es ist unbedingt erforderlich, die entstehende Reaktionswärme abzuführen. Hier ist der Einsatz eines Radialstromreaktors besonders vorteilhaft, bei dem in die Katalysatorschüttung (01) ein Rohrbündelwärmetauscher (02) mit gewickelten Kühlrohren (03) eingebaut ist. In diesen strömt ein geeignetes Wärmeträgermedium, zum Beispiel Druckwasser

oder Kerosin. In einer möglichen und vorteilhaften Bauform besteht das Rohrbündel aus mehreren konzentrischen Rohrlagen, die vom Halbkugelboden des Verteilers (04) ausgehen und am ebenfalls halbkugelförmigen Boden des Sammlers (05) wieder zusammengeführt werden. Anzahl, Abstand in horizontaler und vertikaler Richtung sowie Größe und Richtung der Steigung der einzelnen Wicklungen können variiert und damit den wärmetechnischen Erfordernissen und der Größe der Katalysatorpartikel angepaßt werden. Bei zentripetaler Durchströmung der Katalysatorschüttung tritt das Reaktionsgemisch über mehrere Stutzen (06) in den außenliegenden konzentrischen Verteillerringraum (07) des Reaktors, der von der Druckbehälterwand (08) und einem mit dieser verbundenen umlaufenden Hemd (09) gebildet wird.

Dieses Hemd trennt den Ringraum von der Katalysatorschüttung. Das Reaktionsgasgemisch verteilt sich und gelangt durch Bohrungen in die Katalysatorschüttung. Diese durchströmt es in radialer Richtung bis hin zu dem innenliegenden Sammelrohr (10), das ebenfalls Durchtrittsöffnungen besitzt. Von hier wird das Produktionsgasgemisch über Austrittsstutzen (11) aus dem Reaktor herausgeführt. Soll eine umgekehrte Strömungsrichtung realisiert werden, so ist dies mit dem gleichen Konstruktionsaufbau möglich.

Ebenso ist eine Bauform möglich, bei der ein Teil des erwärmten Kühlmediums (zum Beispiel in Form von Wasserdampf) zum Aufheizen kalten Reaktoreingangsgases verwendet wird. Hierzu können eine oder mehrere der konzentrischen Wicklungen (12) vom Kühlkreislauf - gewickelte Kühlrohre (03) - abgekoppelt und zu einem von rückgeführtem, aufgeheizten Kühlmedium durchströmten Heizkreislauf zusammengeführt werden (13). Dies ist bei zentripetaler, aber auch bei entsprechender Anordnung der abgekoppelten Wicklungen bei zentrifugaler Strömungsrichtung möglich.

Der Reaktor mit einem Wärmetauscher mit gewickelten Rohren besitzt deutlich bessere wärmetechnische Eigenschaften als die herkömmliche Bauart mit längsdurchströmten Geradrohrbündeln. Damit ergibt sich als Vorteil, daß der Reaktor bei gleicher Produktionsleistung deutlich kompakter gebaut werden kann und Abmaße, Gewicht und Investitionskosten wesentlich verringert werden. Als weiterer Vorteil ist zu nennen, daß mit diesem Bautyp eine Erhöhung der Produktionsleistung durch Vergrößerung des Reaktors möglich ist, während mit den heutzutage realisierten Baugrößen bei Geradrohrbündeln die Grenze des wirtschaftlich sinnvollen erreicht ist. Schließlich ist der konstruktive Aufbau mit gewickeltem Rohrbündel vorteilhafter hinsichtlich auftretender Wärmespannungen, die durch Temperaturdifferenzen zwischen Reaktionsgasgemisch und Kühlmedium, also zwis-

schen Reaktordruckbehälterwand und Kühlrohrwand hervorgerufen werden. Durch das elastische Federverhalten der gewickelten Rohre können große Temperaturdifferenzen ertragen werden, ohne mechanische Spannungen hervorzurufen, was für den Normalbetrieb, aber vor allem für die sichere Beherrschung von Betriebsstörungen vorteilhaft ist. Dem erfindungsgemäßen Reaktor und Verfahren ist also zusätzlich eine nicht unerhebliche Erhöhung der Betriebssicherheit gegenüber dem Stand der Technik zu eigen.

Eine weitere Möglichkeit zur Abführung der bei exothermen Reaktionen anfallenden Reaktionswärme im erfindungsgemäßen Reaktor und Verfahren besteht in ihrer direkten Verwendung zum Aufheizen des kalten Reaktionsgasgemisches durch das Verfahren der sogenannten Frischgaseinspeisung. Die Anzahl und die Lage der Frischgasaustrittsstellen in der Katalysatorschüttung kann dabei je nach der am gegebenen Ort in der Katalysatorschüttung entstehenden und abzuführenden Wärmemenge unterschiedlich sein. Durch dieses Verfahren wird die durch aktive Kühlung oder über einen separaten Wärmetauscher aus dem Reaktor abzuführende Wärmemenge verringert. Die für eine aktive Kühlung notwendigen technischen Einrichtungen oder ein separater Wärmetauscher können daher kleiner dimensioniert werden und die bei ihrer Herstellung und Montage anfallenden Kosten sind geringer.

Ebenso bei exothermen Reaktionen anwendbar ist eine Kombination der vorstehend beschriebenen Kühlmethoden, die in einem Reaktor mit radialer Strömung des Reaktionsgasgemisches durch das Katalysatorbett eingesetzt wird. Wärme, die nicht durch das Einleiten kalten Reaktoreingangsgases verbraucht wird, wird dabei durch ein in gewickelten Rohren durch das Katalysatorbett strömendes Kühlmedium abgeführt.

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Durchführung einer heterogenkatalytischen Gasphasenreaktion kann sowohl in Kreisgasfahrweise als auch mit einmaligem Durchtritt der Reaktionsgasmischung durch das Katalysatorbett durchgeführt werden. In der Kreisgastfahrweise wird das Reaktionsgasgemisch im Kreislauf durch den katalysatorgefüllten Reaktor geschickt, gebildete Produkte sowie entstandene Nebenprodukte und Stoffe, die sich im Kreisgas ansonsten anreichern würden, werden durch geeignete Maßnahmen aus dem Kreislauf entfernt und die entsprechenden Mengen an Einsatzstoffen sowie gegebenenfalls Reaktionsmodifiziermitteln dem Gasgemisch vor erneutem Durchgang durch den Reaktor zugemischt. Bei der Ausführungsform mit einmaligem Gasdurchtritt durch den Reaktor wird das gesamte Gasgemisch nach dem Reaktor aufgearbeitet.

Genauso ist es mit dem erfindungsgemäßen Reaktor und Verfahren möglich, endotherme Reaktionen durchzuführen. In den Rohren des Wärmetauschers strömt dann ein Heizmedium, die oben beschrieben vorteilhaften wärmetechnischen Eigenschaften des erfindungsgemäßen Reaktors gelten für einen Wärmestrom in umgekehrter Richtung, wie er bei endothermen Reaktionen benötigt wird, ebenso wie für exotherme Reaktionen.

#### Patentansprüche

- 5 1. Reaktor zur Durchführung heterogenkatalytischer Gasphasenreaktionen, dadurch gekennzeichnet, daß eine Reaktionsgasmischung radial zur Längsachse des Reaktors und vorzugsweise zentripetal durch das Katalysatorbett strömt, und daß die entstehende Reaktionswärme mittels eines in die Katalysatorschüttung eingebauten Rohrbündelwärmetauschers, bestehend aus einem oder mehreren gewickelten Rohren, durch ein Kühlmedium strömt, abgeführt wird.
- 10 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß bei zentripetaler Strömungsrichtung die in den Reaktor eingeleiteten Reaktionsgase beziehungsweise bei zentrifugaler Strömungsrichtung die aus der Katalysatorschüttung austretenden Reaktionsgase in einen um die Katalysatorschüttung angeordneten Verteilerringraum gelangen, der von der Druckbehälterwand und einem mit dieser verbundenen, umlaufenden Hemd gebildet wird, das mit Durchlaßöffnungen versehen ist.
- 15 3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß bei zentripetaler Strömungsrichtung die aus der Katalysatorschüttung austretenden Reaktionsgase beziehungsweise bei zentrifugaler Strömungsrichtung die in den Reaktor eingeleiteten Reaktionsgase in ein konzentrisch zur Längsachse angeordnetes, innenliegendes Sammelerohr gelangen, das mit Durchlaßöffnungen versehen ist und über Stutzenleitungen von außerhalb des Reaktors angeschafft werden kann.
- 20 4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß eine Reaktionsgasmischung gemäß einer der in den Ansprüchen 2 oder 3 beschriebenen Ausführungsformen radial zur Längsachse des Reaktors und vorzugsweise zentripetal eine lose Katalysatorschüttung durchströmt, und daß die entstehende Reaktionswärme durch Einleiten kalter Reaktionsgase in den Reaktor nach dem Prinzip der Kaltgasquenchung verbraucht wird.
- 25
- 30
- 35
- 40
- 45
- 50
- 55

5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die freiwerdende Reaktionswärme durch eine Kombination der in den Ansprüchen 1 und 4 genannten Kühlmethoden - ein im Katalysatorbett eingebauter Rohrbündelwärmetauscher mit einem oder mehreren gewickelten Rohren, in denen ein Kühlmedium strömt und das Prinzip der Kaltgasquenchung - abgeführt wird.
6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3 und 5, dadurch gekennzeichnet, daß Bündel von mehreren konzentrisch gewickelten Kühlrohren in Lagen angeordnet werden, wobei die Schraubenrichtung benachbarter Bündel wechselt kann und die Steigung der Rohrwicklung und/oder vertikaler und horizontaler Abstand benachbarter Rohrwicklungen variieren kann und den wärmetechnischen Erfordernissen angepaßt werden kann.
7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, 5 und 6, wobei bei zentripetaler Strömung des Reaktionsgasgemisches die Steigung der Rohrwicklungen und/oder der Abstand benachbarter Rohrwicklungen in der Nähe der äußeren Begrenzung der Katalysatorschüttung geringer ist.
8. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, 5 und 6, wobei bei zentrifugaler Strömung des Reaktionsgasgemisches die Steigung der Rohrwicklungen und/oder der Abstand benachbarter Rohrwicklungen in der Nähe der inneren Begrenzung der Katalysatorschüttung geringer ist.
9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, 5 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß kaltes Reaktionsgasgemisch durch rückgeführtes aufgeheiztes Kühlmedium erwärmt wird, das bei zentripetaler Strömungsrichtung ein oder mehrere außenliegende, bei zentrifugaler Strömungsrichtung ein oder mehrere innenliegende Rohrwicklungen durchströmt, die vom Kühlrohrbündel abgekoppelt sind.
10. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß das zur Synthese verwendete Reaktionsgasgemisch in einem Kreislauf durch den Reaktor geführt wird, wobei nach dem Durchgang durch den Reaktor entstandene Wertprodukte und Nebenprodukte der Reaktion sowie eventuell sich ansonsten im Kreisgas anreichernde Stoffe durch geeignete Maßnahmen aus dem Kreislauf entfernt werden und dem Gasgemisch anschließend, vor dem erneuten Durchgang durch den Reak-
- tor wieder Einsatzstoffe sowie gegebenenfalls Reaktionsmodifiziermittel durch geeignete Maßnahmen zugeführt werden.
- 5      11. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Herstellung von Ethylenoxid aus Ethylen und Sauerstoff.
- 10     12. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Herstellung von Acrylsäure aus Acrolein und Sauerstoff.
- 15     13. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Herstellung von Methacrylsäure aus Methacrolein und Sauerstoff.
- 20     14. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Herstellung von Styrol durch Dehydratisierung von Methylphenylcarbinol.
- 25     15. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Herstellung von Methanol aus Synthesegas.
- 30     16. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Methanisierung von Synthesegas.
- 35     17. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Tieftemperaturkonvertierung.
- 40     18. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Umsetzung von Wasser mit Olefinen zu Alkoholen.
- 45     19. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Oxychlorierung von Olefinen oder Aromaten.
- 50     20. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10 zur Herstellung von Methylaminen aus Methanol und Ammoniak.
- 55

FIG.1

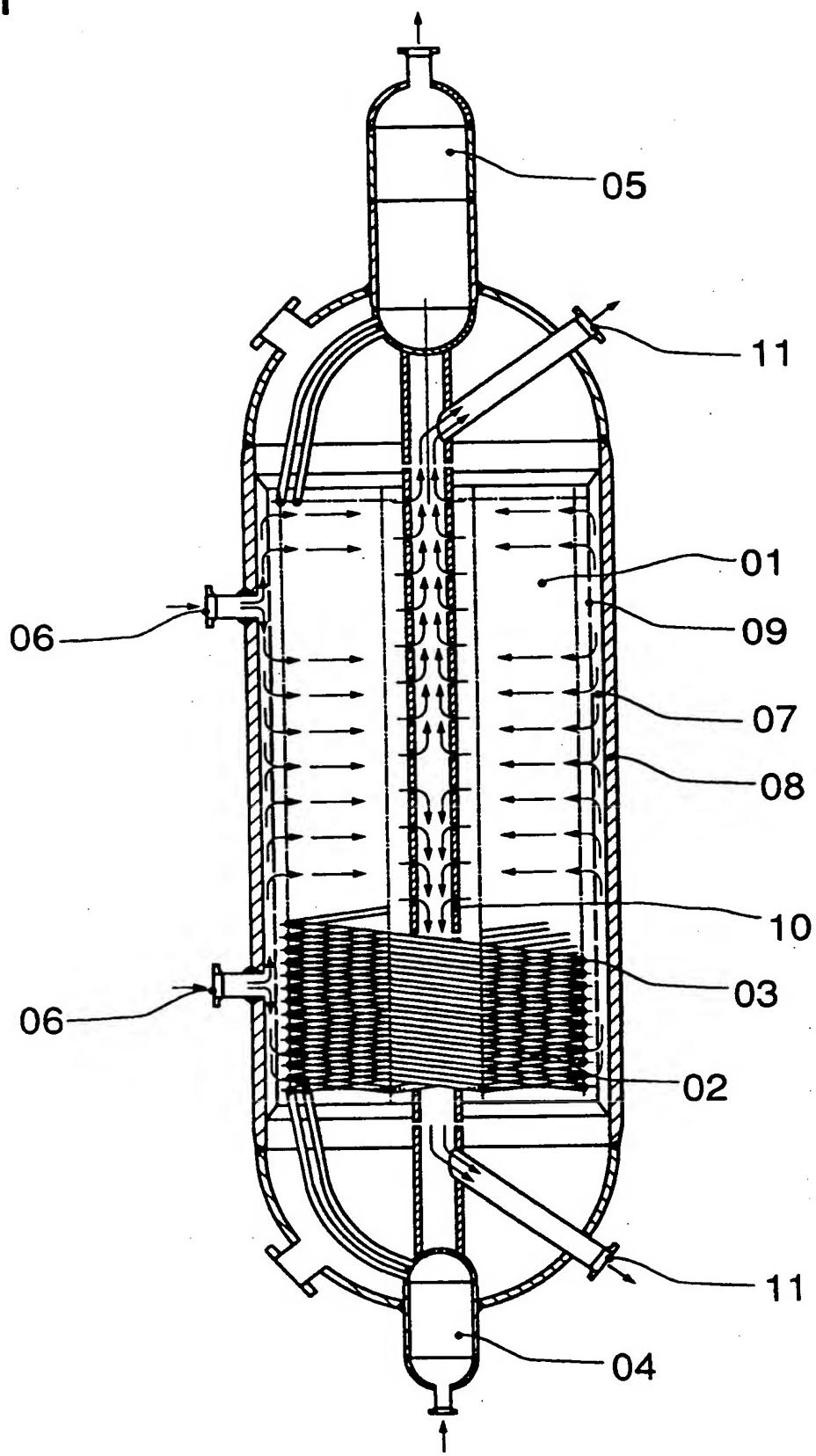
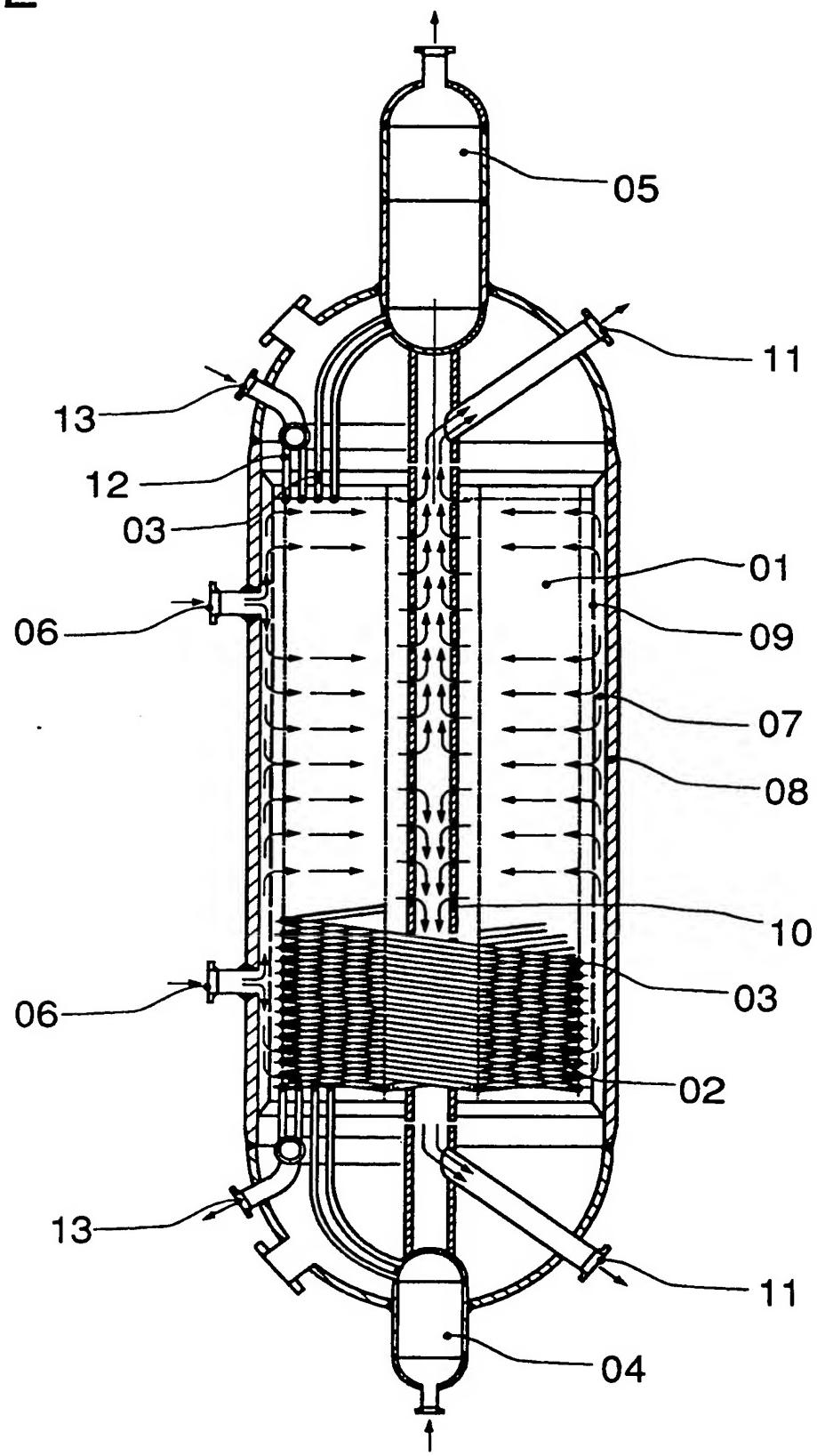


FIG.2





Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 92 11 5129

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betreff Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. CL.5)
A	GB-A-2 046 618 (TOYO ENGINEERING CORPORATION) * Zusammenfassung * * Seite 2, rechte Spalte, Zeile 115 - Seite 5, rechte Spalte, Zeile 100 * * Seite 8, rechte Spalte, Zeile 73 - Zeile 114 * * Abbildung 2 * --- A LINDE BERICHTE AUS TECHNIK UND WISSENSCHAFT Nr. 58, 1986, WIESBADEN DE Seiten 5 - 8 M.LEMBECK 'LINDE ISOTHERMREAKTOR FÜR DIE METHANOLSYNTHESE' * das ganze Dokument * --- A CHEMIE. INGENIEUR. TECHNIK Bd. 58, Nr. 3, 1986, WEINHEIM DE Seiten 212 - 215 U.LAHNE & R.LOHMÜLLER 'SCHÜTTSCHICHTREAKTOREN MIT GEWICKELTEN KÜHLROHREN, EINE KONSTRUKTIVE NEUENTWICKLUNG ZUR DURCHFÜHRUNG EXOTHERMER KATALYTISCHER PROZESSE' * das ganze Dokument * --- A US-A-2 363 738 (UNIVERSAL OIL PRODUCTS COMPANY) * das ganze Dokument * ----	1-5,11, 15-17,19 1,4-9, 15,16,18 1,5-9, 15,16	B01J8/02  RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. CL.5) B01J C07D
		1-4	
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer	
DEN HAAG	05 JANUAR 1993	STEVNSBORG N.	
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE			
X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet	T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze		
Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie	E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist		
A : technologischer Hintergrund	D : in der Anmeldung angeführtes Dokument		
O : nichtschriftliche Offenbarung	L : aus andern Gründen angeführtes Dokument		
P : Zwischenliteratur	& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument		

THIS PAGE BLANK (USPTO)